

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2001-220688
(P2001-220688A)

(43) 公開日 平成13年8月14日 (2001.8.14)

(51) Int.Cl.⁷

C 2 3 C 26/00

識別記号

F I

C 2 3 C 26/00

データベース (参考)

Z 4 K 0 4 4

審査請求 未請求 請求項の数16 O L (全 12 頁)

(21) 出願番号 特願2000-31838 (P2000-31838)

(22) 出願日 平成12年2月9日 (2000.2.9)

(71) 出願人 000003821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72) 発明者 筒井 裕二

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(72) 発明者 西川 和宏

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(74) 代理人 100062144

弁理士 青山 稔 (外1名)

Fターム (参考) 4K044 AA12 AB02 AB10 BA12 BB15

BC00 BC14 CA02 CA07 CA14

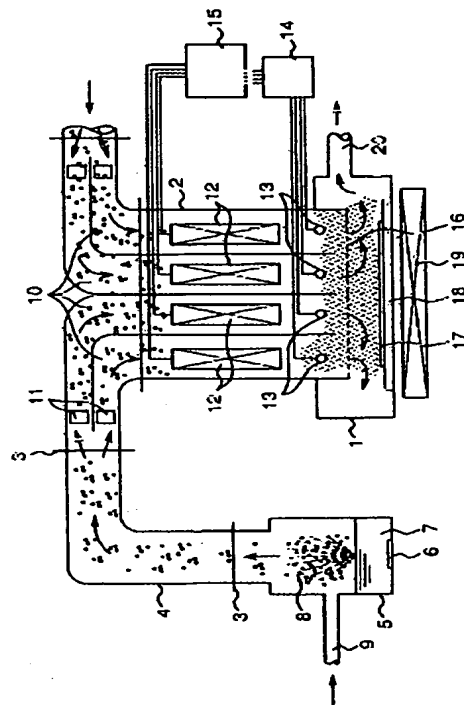
CA53 CA55 CA62 CA71

(54) 【発明の名称】 薄膜形成装置及び薄膜形成方法

(57) 【要約】

【課題】 大面積で均一な薄膜を、再現性良く、しかも安価に形成できる薄膜形成装置及び薄膜形成方法を提供する。

【解決手段】 微粒子化した原料溶液を含む反応性流体を、基板表面に吹きつけて基板に薄膜を形成する薄膜形成装置において、原料溶液を微粒子化して反応性流体とする微粒子化装置と、該反応性流体を加熱する加熱手段と、該反応性流体を基板表面に吹き付ける、開口部が略矩形的の吹きつけノズルと、該基板が載置された反応チャンバとを含み、該吹きつけノズルが、該開口部近傍に温度センサを備え、該温度センサを用いて該加熱手段を制御する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 微粒子化した原料溶液を含む反応性流体を、基板表面に吹きつけて基板に薄膜を形成する薄膜形成装置であって、原料溶液を微粒子化して反応性流体とする微粒子化装置と、該反応性流体を加熱する加熱手段と、該反応性流体を基板表面に吹き付ける、開口部が略矩形の吹きつけノズルと、該基板が載置された反応チャンバとを含み、該吹きつけノズルが、該開口部近傍に温度センサを備え、該温度センサを用いて該加熱手段を制御することを特徴とする薄膜形成装置。

【請求項2】 上記吹きつけノズルが、上記開口部の長辺方向に並んだ複数の流路に区切られ、上記温度センサと上記加熱手段とが、各流路毎に設けられ、該加熱手段が、各流路の温度センサの測定温度が略同一となるように、該反応性流体を加熱する手段であることを特徴とする請求項1に記載の薄膜形成装置。

【請求項3】 上記加熱手段が、各流路に設けられたヒータであることを特徴とする請求項2に記載の薄膜形成装置。

【請求項4】 上記加熱手段が、加熱した気体を各流路に導入して、各流路の上記反応性流体と混合させる手段であることを特徴とする請求項2に記載の薄膜形成装置。

【請求項5】 更に、上記基板表面に向かって気流を送る吹きつけ手段を備え、上記吹きつけノズルから該基板に吹きつけられた上記反応性流体を、該気流によって該基板に押しつけて、該基板の表面に沿って流れるようにしたことを特徴とする請求項1に記載の薄膜形成装置。

【請求項6】 上記気流が、上記基板に対して略垂直方向、又は該基板上を上記反応性流体が流れる方向に傾斜した方向に送られることを特徴とする請求項5に記載の薄膜形成装置。

【請求項7】 上記微粒子化装置と、上記吹きつけノズルとが、直接、接続されたことを特徴とする請求項1に記載の薄膜形成装置。

【請求項8】 上記微粒子化装置と、上記吹きつけノズルとが、直線状の円形配管を介して接続され、該円形配管の内径が、50mmから150mmであることを特徴とする請求項1に記載の薄膜形成装置。

【請求項9】 上記吹きつけノズルの開口部の短辺が、5mmから25mmであることを特徴とする請求項1に記載の薄膜形成装置。

【請求項10】 上記薄膜が、プラズマディスプレイパネル用の透明導電性膜又は誘電体保護膜であることを特

徴とする請求項1～9のいずれかに記載の薄膜形成装置。

【請求項11】 請求項1の薄膜測定装置で薄膜を形成する基板を搭載するトレイであって、基板を載せる台部と、該台部上に載せられた該基板の周囲を、該台部に押しつけて固定する枠部とを含み、該枠部が、該基板表面に沿った気流が這い上がるように、その内周に傾斜面を有することを特徴とするトレイ。

【請求項12】 原料溶液を微粒子化して反応性流体とし、該反応性流体を基板に吹きつけて薄膜を形成する薄膜形成方法であって、原料溶液を微粒子化して反応性流体とする工程と、該反応性流体を吹きつけノズルに導入する工程と、該吹きつけノズルの開口部において該反応性流体が所定の温度になるように、該反応性流体を加熱する加熱工程と、該開口部から該反応性流体を該基板の表面に吹きつけて、該基板上に薄膜を形成する工程とを含むことを特徴とする薄膜形成方法。

【請求項13】 上記加熱工程が、横断面が略矩形形状の上記吹きつけノズルを、該矩形形状の長辺方向に並んだ複数の流路に分け、各流路の開口部近傍に設けた温度センサにより、各流路内に設けたヒータを制御し、各流路の開口部から吹き出される該反応性流体の温度を略同一にする工程であることを特徴とする請求項12に記載の薄膜形成方法。

【請求項14】 上記加熱工程が、横断面が略矩形形状の上記吹きつけノズルを、該矩形形状の長辺方向に並んだ複数の流路に分け、各流路の開口部近傍に設けた温度センサにより温度が制御された気体を各流路に送り込んで、各流路の該反応性流体と混合させ、各流路の開口部から吹き出される該反応性流体の温度を略同一にする工程であることを特徴とする請求項12に記載の薄膜形成方法。

【請求項15】 更に、上記基板表面に向かって気流を送り、上記吹きつけノズルから該基板に吹きつけられた上記反応性流体を、該気流によって該基板に押しつけて、該基板の表面に沿って流す工程を含むことを特徴とする請求項12に記載の薄膜形成方法。

【請求項16】 上記薄膜が、プラズマディスプレイパネル用の透明導電性膜又は誘電体保護膜であることを特徴とする請求項12～15のいずれかに記載の薄膜形成方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、原料溶液を微粒子化し、基板上に吹きつけて薄膜を形成する薄膜形成方法及び薄膜形成装置に関する。

【0002】

【従来の技術】太陽電池やフラットパネルディスプレイ等の製造に用いる大面積の基板に均一な薄膜を形成する方法としては、原料溶液を超音波振動により微粒子化し、これを基板上に吹きつけて薄膜を形成する方法が使用されている。

【0003】図12は、従来の薄膜形成装置を構成する微粒子化装置の概略図である。供給槽108に入れられた原料溶液110が、ポンプ107により微粒子化槽105に導入される。微粒子化槽105では、超音波振動子106により原料溶液110が微粒子化され、流量計109を通して導入されるキャリアガスとともに、流出口111から反応チャンバに導かれる。

【0004】図13は、従来の薄膜形成装置の概略図である。上述の微粒子化装置100から送られた微粒子化した原料溶液110は、微粒子加熱用ヒータ101で加熱されながら反応装置102に導かれ、基板加熱用ヒータ104で加熱された基板103上に吹きつけられて、基板103上に薄膜が形成される。基板103は、所定の方向に搬送できるようになっている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかし、かかる方法では、微粒子化装置100で微粒子化された微粒子が基板103に到達するまでに再凝集し、ノズルの内壁等に再付着してしまい、原料の利用効率が低下するという問題があった。また、成膜開始直後等において、基板103の表面への微粒子の吹き付け流量が不安定となり、また微粒子の粒径にもばらつきが生じるため、微粒子が付着した基板103の温度が不均一となり、膜質が低下するという問題もあった。更には、大型の基板103を用いた場合、加熱による基板103の変形が大きい場合、基板103上に形成される膜厚が不均一になるという問題もあった。

【0006】そこで、本発明は、面積の大きい基板の表面に、均一な薄膜を、再現性良く、しかも安価に形成するための薄膜形成装置、及び薄膜形成方法を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明は、微粒子化した原料溶液を含む反応性流体を、基板表面に吹きつけて基板に薄膜を形成する薄膜形成装置であって、原料溶液を微粒子化して反応性流体とする微粒子化装置と、該反応性流体を加熱する加熱手段と、該反応性流体を基板表面に吹き付ける、開口部が略矩形の吹きつけノズルと、該基板が載置された反応チャンバとを含み、該吹きつけノズルが、該開口部近傍に温度センサを備え、該温度センサを用いて該加熱手段を制御することの特徴とする薄膜

形成装置である。かかる薄膜形成装置を使用することにより、大面積の基板に、膜特性の均一な薄膜を形成することが可能となる。また、かかる薄膜形成装置では、基板表面における反応性流体の温度が正確に制御できるため、特に、装置を起動させた直後に発生しやすい膜質の低下を防止することができる。また、上記実施の形態にかかる薄膜形成装置では、ノズルに加熱手段を設けて分解ガスの温度を制御するため、ノズルの壁面上等での反応性流体の凝縮を低減し、原材料の利用効率を向上させることができる。

【0008】また、本発明は、上記吹きつけノズルが、上記開口部の長辺方向に並んだ複数の流路に区切られ、上記温度センサと上記加熱手段とが、各流路毎に設けられ、該加熱手段が、各流路の温度センサの測定温度が略同一となるように、該反応性流体を加熱する手段であることを特徴とする薄膜形成装置でもある。このように、複数の流路を備えることにより、反応性流体の濃度、温度を正確に制御でき、薄膜の膜特性、膜厚の均一化を図ることができる。

【0009】上記加熱手段は、各流路に設けられたヒータであっても良い。

【0010】上記加熱手段は、加熱した気体を各流路に導入して、各流路の上記反応性流体と混合させる手段であっても良い。

【0011】また、本発明は、更に、上記基板表面に向かって気流を送る吹きつけ手段を備え、上記吹きつけノズルから該基板に吹きつけられた上記反応性流体を、該気流によって該基板に押しつけて、該基板の表面に沿って流れるようにしたことを特徴とする薄膜形成装置でもある。このように、基板表面に沿って反応性流体を流すことにより、薄膜の形成に寄与する割合を向上させ、原料溶液に利用効率を向上させることができる。

【0012】上記気流は、上記基板に対して略垂直方向、又は該基板上を上記反応性流体が流れる方向に傾斜した方向に送られることが好ましい。かかる角度で気流を送ることにより、反応性流体を基板上でスムーズに流すことができる。

【0013】また、本発明は、上記微粒子化装置と、上記吹きつけノズルとが、直接、接続された薄膜形成装置でもある。かかる構造を用いることにより、装置内での反応性流体の凝縮率を少なくすることができる。

【0014】また、本発明は、上記微粒子化装置と、上記吹きつけノズルとが、直線状の円形配管を介して接続され、該円形配管の内径が、50mmから150mmである薄膜形成装置でもある。配管を使用する場合には、かかる内径の配管を用いることにより、配管内での反応性流体の凝縮等を低減することができる。

【0015】上記吹き出しノズルの開口部の短辺は、5mmから25mmであることが好ましい。かかる形状の開口部とすることにより、ノズル開口部における反応性

流体の凝縮等を低減することができる。

【0016】上記薄膜は、プラズマディスプレイパネル用の透明導電性膜又は誘電体保護膜であっても良い。かかる薄膜形成装置をプラズマディスプレイパネル用の透明導電性膜又は誘電体保護膜の形成に使用することにより、大面積の透明導電性膜等を、均一に、再現性良く、しかも安価に形成することが可能となる。

【0017】また、本発明は、上記薄膜測定装置で薄膜を形成する基板を搭載するトレイであって、基板を載せる台部と、該台部上に載せられた該基板の周囲を、該台部に押しつけて固定する枠部とを含み、該枠部が、該基板表面に沿った気流が追いつくように、その内周に傾斜面を有することを特徴とするトレイでもある。かかるトレイを用いることにより、基板表面における反応性流体の流れを良好にし、均一性の高い薄膜を形成することが可能となる。

【0018】また、本発明は、原料溶液を微粒子化して反応性流体とし、該反応性流体を基板に吹き付けて薄膜を形成する薄膜形成方法であって、原料溶液を微粒子化して反応性流体とする工程と、該反応性流体を吹きつけノズルに導入する工程と、該吹きつけノズルの開口部において該反応性流体が所定の温度になるように、該反応性流体を加熱する加熱工程と、該開口部から該反応性流体を該基板の表面に吹きつけて、該基板上に薄膜を形成する工程とを含むことを特徴とする薄膜形成方法でもある。かかる方法を用いることにより、大面積で均一な薄膜を、再現性良く、しかも安価に形成することが可能となる。

【0019】また、本発明は、上記加熱工程が、横断面が略矩形形状の上記吹きつけノズルを、該矩形形状の長辺方向に並んだ複数の流路に分け、各流路の開口部近傍に設けた温度センサにより、各流路内に設けたヒータを制御し、各流路の開口部から吹き出される該反応性流体の温度を略同一にする工程であることを特徴とする薄膜形成方法でもある。

【0020】また、本発明は、上記加熱工程が、横断面が略矩形形状の上記吹きつけノズルを、該矩形形状の長辺方向に並んだ複数の流路に分け、各流路の開口部近傍に設けた温度センサにより温度が制御された気体を各流路に送り込んで、各流路の該反応性流体と混合させ、各流路の開口部から吹き出される該反応性流体の温度を略同一にする工程であることを特徴とする薄膜形成方法でもある。

【0021】また、本発明は、更に、上記基板表面に向かって気流を送り、上記吹きつけノズルから該基板に吹きつけられた上記反応性流体を、該気流によって該基板に押しつけて、該基板の表面に沿って流す工程を含むことを特徴とする薄膜形成方法でもある。

【0022】上記薄膜は、プラズマディスプレイパネル用の透明導電性膜又は誘電体保護膜であっても良い。

【0023】

【発明の実施の形態】実施の形態1. 図1は、本発明の実施の形態1にかかる薄膜形成装置の概略図である。図1に示すように、薄膜形成装置は、反応チャンバ1と、反応チャンバ1の上部に取り付けられたノズル2とを備える。ノズル1には、配管接続部3により配管4が接続され、更に、配管4の他端には、配管接続部3により微粒子化装置5が接続されている。微粒子化装置5には、超音波振動子6が設けられ、液体状の原料溶液7を微粒子化する。微粒子化された微粒子8は、キャリアガス導入管9から導入されるキャリアガスによりノズル2に送られる。超音波振動子6を用いて微粒子化する方法のかわりに、原料溶液とキャリアガスの圧力差を用いて微粒子化する既存の方法を用いることもできる。

【0024】ノズル2内には、4つの分割流路10が設けられている。2つの分割流路10が1組となって、それぞれ微粒子化装置6に接続されている。ノズル2の入口には流量調節弁11が設けられ、各分割流路10に送られる微粒子8を含むキャリアガス（反応性流体）の流量を制御している。分割流路10の数は、薄膜を形成する基板の面積や必要とされる薄膜の均一性等により、任意に定めることができる。流路を分割せずに、ノズル全体で1流路とすることも可能である。このように、流量調節弁11を用いて各分割流路10の流量を制御することにより、各流路内に導入される微粒子の量（濃度）をほぼ同一にして、かかる微粒子から形成される薄膜の膜厚、膜質等を均一なものとしてすることができる。なお、キャリアガスの流量等が変動する場合には、各流路の流量を等しくするために、各流量調節弁11を調節する制御装置を設けてもよい。

【0025】ノズル2の各分割流路10内には、ヒータ12と、熱電対13とが設けられている。熱電対13には、温度計測器14が接続され、ノズル2の吹き出し口16近傍の温度を測定している。かかる測定結果を元に、ヒータ制御器15でヒータ12の出力を制御し、吹き出し口16近傍のガスの温度が所定の温度となるように制御している。

【0026】ノズル2に、キャリアガスとともに導入された微粒子8は、ヒータ12で加熱され、微粒子8中の溶媒が蒸発して原料成分が気化し、更に、熱が加わることにより、分解ガスとなる。ノズル2の吹き出し口16における分解ガスの温度が所定の温度となるように、ヒータ12により制御される。本実施の形態では、ヒータ12は、分割流路12内に設けられているが、分割流路12の周囲を囲むように設けても構わない。

【0027】吹き出し口16から出た分解ガスは、反応チャンバ1内の基板17の表面に吹きつけられる。基板17は、トレイ18に搭載され、紙面に垂直方向に移動するようになっている。反応チャンバ1の下部には基板加熱ヒータ19が設けられ、基板17を加熱する。基板

17の表面に到達した分解ガスは、加熱された基板17の表面で化学反応を起こし、薄膜を形成する。薄膜を形成した後、分解ガスは排気口20から反応チャンバ1の外部に排出される。

【0028】図2は、図1の薄膜形成装置の外観図である。図1と同一符号は、同一又は相当箇所を示す。図2では、反応チャンバ1、微粒子化装置5は省略してある。ノズル2の吹き出し口16は、例えば、10mm×400mmの矩形であり、吹き出し口16と基板17の表面との間隔は、例えば10～20mmである。基板17は、トレイ18に搭載された状態で、矢印21の方向に移動するため、基板17表面の全面に薄膜を形成することができる。吹き出し口16の幅（矢印21に対して垂直方向の長さ）は、薄膜形成する基板の幅よりやや広めとすることが好ましい。

【0029】このように、本実施の形態にかかる薄膜形成装置を使用することにより、基板の幅方向（移動方向に垂直な方向）に渡って、供給される分解ガスの温度をほぼ均一にできるため、膜特性の均一な薄膜の形成が可能となる。従って、矢印21の方向に基板17を移動させながら薄膜形成を行なうことにより、基板17の表面全体に膜特性の均一な薄膜を形成することができる。

【0030】実施の形態2. 図3は、本発明の実施の形態2にかかる薄膜形成装置の概略図である。図中、図1と同一符号は、同一又は相当箇所を示す。原料溶液7を微粒子化し、微粒子8をキャリアガスとともにノズル2に送る点は、上述の実施の形態1と同様である。本実施の形態にかかる薄膜形成装置では、分割流路10内にヒータ12を設ける代わりに、各分割流路10に、予め加熱した気体を導入している。即ち、各分割流路10内に、流入管22が設けられている。流入管22の上部には、ヒータ23が設けられている。ガス導入部25から導入された気体は、流量調節弁24で所定の流量に調整される。更に、流入管22の周囲に設けられたヒータ23により加熱される。ヒータ23の温度は、吹き出し口12のガス温度を熱電対13で測定しながら制御される。

【0031】このように、本実施の形態にかかる薄膜形成装置では、加熱された気体を各分割流路10に導入することにより、各分割流路10内の温度を制御し、微粒子8を加熱、分解し、基板17の表面に薄膜を形成している。なお、基板17は、紙面に垂直方向に移動しながら成膜される。かかる装置を使用することによっても、基板の幅方向（移動方向に垂直な方向）に渡って、供給される分解ガスの温度をほぼ均一にできるため、膜特性の均一な薄膜の形成が可能となる。

【0032】実施の形態3. 図4は、本発明の実施の形態3にかかる薄膜形成装置の概略図である。図中、図1と同一符号は、同一又は相当箇所を示す。原料溶液7を微粒子化し、微粒子8をキャリアガスとともにノズル2

に送られ、基板17表面に送られる点は、上述の実施の形態1と同様である。

【0033】図4に示すように、基板17の表面に吹き付けられた微粒子5の分解ガスは、基板17の左端に供給された後に、基板表面に沿って右方向に流れ、基板17上に薄膜を形成する。基板17は、紙面に垂直方向に移動しながら成膜される。この場合、基板17表面と、吹き付けノズル2との間隔が広いと、微粒子分解ガスの拡散により、基板17表面における微粒子分解ガスの濃度が低下する。かかる分解ガス濃度の低下は、薄膜形成速度の減少、薄膜の膜厚分布の均一性を低下させるとともに、基板17表面で成膜反応に寄与する原料の利用効率を低下させることになる。これは、例えば、高価な原料を用いる場合には、製造コストが高騰する原因ともなる。

【0034】そこで、本実施の形態にかかる薄膜形成装置では、流入管22を設けて、基板17の表面に気体を吹き付けることにより、微粒子分解ガスが基板17の表面に沿って流れるようにする。流入管22には、ヒータ23が設けられ、流入管22内を通る気体を所定の温度に加熱するようになっている。

【0035】このように、所定の温度に加熱されたガスを、流入管22から基板17の表面に向かって吹き付けることにより、温度がほぼ一定の分解ガスを、基板17の左端から右端に向かって、表面に沿って流すことができる。これにより、分解ガスの拡散による、特に、基板右端部における薄膜形成速度の減少を防止することができる。薄膜の膜厚を均一にすることができる。また、原料の利用効率も向上させることができる。本実施の形態では、基板17の表面に対して垂直に加熱されたガスを吹きつけたが、基板17の表面を微粒子分解ガスが流れる方向（図4では右方向）傾けてガスを吹きつけても良い。

【0036】ここで、微粒子化装置5で形成した微粒子8を、キャリアガスを用いてノズル2に送る場合、微粒子化装置5とノズル2を接続する配管4の壁面への凝縮、付着を考慮して、配管4を設計しなければならない。特に、微粒子を含むキャリアガスの供給量、管内を流れる流速を考慮して設計しなければならない。

【0037】即ち、ある粒径の微粒子群が、管内を一定流量で流れる場合、管径を大きくする（管内流路断面を大きくする）と、流速が小さくなり、重力等の影響により管軸方向流れ以外の速度成分が多く現れ、管壁内壁面への微粒子の凝縮付着が増加する。一方、管径を小さくする（管内流路断面を小さくする）と、流速が大きくなり、管軸方向の流れ以外の速度成分は少なくなるが、微粒子同士や管内壁との衝突が活発となり、微粒子の結合凝縮が増え、また管内壁面への凝縮付着も増える。従って、配管の径は、材料の利用効率を決める重要な設計パラメータであり、これらを考慮して最適な配管径とする

ことが必要となる。

【0038】図5は、配管内を流れる微粒子の管壁面へ凝縮、付着や、微粒子同士の結合凝縮等による、微粒子の減少を定量的に測定するための実験装置の概略図である。図5に示すように、重量計28上の原料溶液タンク29に入れられた原料溶液7が、ポンプ30によって微粒子化装置31に送られる。微粒子化装置31内では、超音波振動子32によって、原料溶液7が微粒子化される。微粒子化された原料溶液7は、パイプ33から供給されるキャリアガスによって微粒子化装置31から送り出される。34はキャリアガスの流量を調節する流量計である。

【0039】微粒子を含むキャリアガスは、内径Dの直配管37を通過する前に、粒度分布測定センサ36によって粒度分布が計測される。更に、配管37を通過した後も、粒度分布測定センサ36'によって粒度分布が計測される。

【0040】最後に、微粒子を含むキャリアガスは、凝縮フィルタ35によって微粒子のみが回収、除去され、キャリアガスは排気口38を通過して外部へ排出される。回収された微粒子は液体となって回収タンク39に入り、重量計40によって重量が測定される変化を計測する。

【0041】図5の装置を用いて測定した、配管の内径Dと、キャリアガスに含まれる所定の微粒子径以下の微粒子の割合との関係を図6に示す。図6において、横軸は使用した円形配管の内径Dである。また、縦軸は、配管通過前における所定の粒径（粒径 $5\mu\text{m}$ ）以下の微粒子の数に対する、配管通過後における所定の粒径（粒径 $5\mu\text{m}$ ）以下の微粒子の数の割合である。ここで、粒子径が $5\mu\text{m}$ 以下の微粒子について測定を行ったのは、薄膜形成を行なうためには、かかる粒径の微粒子を用いるのが好ましいからである。なお、配管の長さLは、 2000mm で一定とした。また、キャリアガスの流量は、 $75\text{l}/\text{分}$ 、 $150\text{l}/\text{分}$ 、 $300\text{l}/\text{分}$ とした。

【0042】図6から明らかなように、キャリアガス流量により多少は変化するが、内径Dが 40mm 以下、又は 150mm 以上になると、微粒子同士の衝突による凝縮や、管内壁への付着により、配管通過後の粒子径 $5\mu\text{m}$ 以下の粒子の割合が減少する。特に、内径 40mm 以下では、管内壁への付着の影響が大きい。かかる実験結果より、粒子径 $5\mu\text{m}$ 以下の微粒子を効率的に輸送するためには、配管の内径を 50mm ～ 150mm とすることが好ましいことがわかる。

【0043】実施の形態4。図7は、本発明の実施の形態4にかかる薄膜形成装置の概略図である。図中、図1と同一符号は、同一又は相当箇所を示す。上述のように、微粒子を輸送する導入配管内において、微粒子の一部が配管内で凝縮するために、材料利用率が低下するという問題がある。そこで、本実施の形態にかかる薄膜形

成装置では、微粒子化装置5を、微粒子吹き付けノズル2の上端部近傍に配置した。これにより、配管を用いずに、微粒子化装置5とノズル2とを、直接、接続することとした。

【0044】具体的には、図7に示すように、微粒子化装置5は、支持台41の上に配置される。微粒子化装置1では、実施の形態1と同様に、原料溶液7が微粒子化され、キャリアガスとともに運び出される。運び出された微粒子8は、スリット42、及びフィルタ43を通過して、ノズル2に導入される。一方、所定の粒径以上の微粒子は、フィルタ43で回収される。回収された微粒子は凝縮して液状になり、回収管45を通過して微粒子化装置5に戻され、再利用される。このような分級手段を用いて、粗大微粒子を回収、再利用することにより、原料溶液7の利用効率を向上させることができる。なお、本実施の形態のような分級手段の代わりに、微粒子を含むキャリアガスを水平方向に流し、キャリアガスに乗れない粗大化した微粒子を、配管に付着させて除去するような分級手段を用いることもできる。

【0045】ノズル2に導入された微粒子8は、実施の形態1と同様に、ヒータ12で加熱、分解され、基板17の表面に薄膜を形成する。残った微粒子8は、キャリアガスとともに排出口20から排出される。基板17は、紙面に垂直方向に移動しながら成膜される。このように、配管を用いずに、微粒子化装置5とノズル2との間の距離を短くすることにより、微粒子の凝縮を防止し、原料溶液の利用効率を向上させることができる。

【0046】ここで、スリット部42は、微粒子化装置5の排出口に設けられた配管と、ノズル2とを接続するが、ノズル2が複数の分割流路を備える場合には、スリット部42を用いることにより、夫々の分割流路に均等に微粒子を分散させることができる。

【0047】図8は、スリットの寸法tと、スリットダクト通過後における粒子径 $5\mu\text{m}$ 以下の微粒子の割合との関係（スリットダクト通過後における粒子径 $5\mu\text{m}$ 以下の微粒子の数の、スリットダクト通過前における粒子径 $5\mu\text{m}$ 以下の微粒子の数に対する割合）、及びスリットの寸法tと、スリットダクト内の流速の均一性との関係を示す。測定は、図8中に示すような、長さLが 1000mm 、幅Wが 500mm 、高さt（可変）の箱状のスリットダクトを用い、スリットダクトの一方からキャリアガスとともに微粒子を導入し、他方から排出して行なった。キャリアガスの流量は、 $300\text{l}/\text{分}$ とした。

【0048】図8から明らかなように、スリットダクトの高さtが 5mm 以下では、スリットダクト通過後の粒子径 $5\mu\text{m}$ 以下の微粒子の割合が減少する。これは、スリットダクトの壁面での付着凝縮が多くなり、粗大粒径の微粒子の割合が大きくなるためと考えられる。一方、スリットダクトの高さtを大きくすると、粒子径 $5\mu\text{m}$ 以下の粒子の割合は増加するが、スリットダクト内での

流速の均一性が悪くなる。これらの結果より、スリットダクト内で微粒子の凝縮が発生しにくく、かつ均一な流速を得るためには、スリットダクトの高さは、5mmから25mm程度とすることが好ましいことがわかる。かかる寸法のスリットを使用することにより、スリット内での凝縮を防止しながら分割流路に均一に微粒子を分散させることができる。これにより、基板上に形成された薄膜の膜質や膜厚の均一性を向上させることができる。

【0049】ここでは、微粒子化装置5とノズル2との間にスリット部42を設ける場合について説明したが、基板に向かって分解ガスを吹き出すノズル2の開口部（吹き出し口）を、かかるスリットの形状にしてもよい。即ち、ノズル2の開口部をスリット形状にすることにより、基板17上に均一に分解ガスを供給することができるが、スリットの寸法も（スリットをノズルの吹き出し口に形成した場合には、基板の移動方向のスリット開口部の寸法となる）が小さいとスリット内で微粒子の凝縮が発生し、頻繁に装置のメンテナンスを行なう必要が生じる。一方、スリットの寸法もを大きくすると、基板17に供給される分解ガスの流速等に分布が生じてしまう。従って、スリットの寸法は、5mm～25mm程度とすることが好ましい。

【0050】実施の形態5。上記実施の形態に示すように、基板の表面には、微粒子を含むキャリアガスがノズルから供給され、化学反応により薄膜が形成される。かかる薄膜の膜質の均一性等を向上させるためには、基板表面温度の均一性を向上させること、基板裏面へのキャリアガスの回り込みを防止して、基板裏面への薄膜形成を防止すること等が必要である。

【0051】このために、基板の周囲をトレイに搭載して固定した状態で薄膜形成が行なわれているが、本実施の形態は、かかるトレイの形状を改良して、薄膜の膜質の向上等を図るものである。なお、トレイは、例えば、カーボンから形成されている。

【0052】上述のように、薄膜の膜質を向上させるために、基板をトレイに搭載した状態で成膜されるが、従来の方法では、基板の周辺部をトレイで保持するため、基板の周辺部において、例えば、膜厚、シート抵抗、透過率等の薄特性が低下する場合があった。

【0053】かかる原因について検討したところ、基板の周辺部における膜質の低下に最も影響するのは、微粒子を含むキャリアガス（反応性流体）の流れであることが分かった。即ち、図9（b）に示すように、基板17がトレイ18に載置された場合、基板17表面とトレイ18の枠部との段差により、基板の周辺部においてキャリアガスが滞留等するため、かかる部分に形成される薄膜の膜特性が低下することが分かった。

【0054】そこで、本実施の形態では、図9（a）に示すように、基板17を載置するトレイに面取加工部を

設けて、基板17の周辺部におけるキャリアガスの滞留や流れの乱れを防止している。これにより、基板17の周辺部における膜特性の低下を防止することができる。なお、かかるトレイを用いた実験結果については後述する。

【0055】実施の形態1から5で説明したように、本実施の形態にかかる薄膜形成装置を使用することにより、大面積の基板上に、膜特性の均一な薄膜を形成することが可能となる。従って、プラズマディスプレイ（PDP）の透明導電成膜や誘電体保護膜を、上記装置を用いて形成することにより、大面積のプラズマディスプレイを、再現性良く、安価に製造することが可能となる。

【0056】また、上記実施の形態にかかる薄膜形成装置では、基板表面における分解ガスの温度が正確に制御できるため、特に、装置を起動させた直後に発生しやすい膜質の低下を防止することができる。

【0057】また、上記実施の形態にかかる薄膜形成装置では、ノズル内にヒータ等を設けて分解ガスの温度を制御するため、ノズルの壁面上等での分解ガスの凝縮を低減し、原材料の利用効率を向上させることができる。これにより、製造コストの低減を図ることが可能となる。

【0058】なお、本実施の形態で述べた薄膜形成装置、薄膜形成方法は、反応チャンバ1の形状、容量等に制約されずに、様々な反応チャンバ1に適用できる。また、かかる装置及び方法は、プラズマディスプレイパネル（PDP）の透明導電性膜や誘電体保護膜、照明管や反射板、テレビブラウン管全面パネル、ガラス建材の表面に形成する光触媒膜、反射防止膜等の形成に適用することができる。

【0059】（実施例）本発明の好ましい実施例について、以下に具体的に説明する。図10は、本実施例で使用する薄膜形成装置の概略図である。薄膜形成に用いる原料としては、有機系スズ化合物30重量%と、ニオブ化合物3重量%とを含有する水溶液が用いられる。微粒子化装置5には、スプレー式噴霧器48を用いて、かかる水溶液が20cc/分で供給される。同時に、キャリアガスとして圧縮空気47が260リットル/分で供給される。

【0060】スプレー式噴霧器48で供給された微粒子は粒度分布が大きいので、粒子径を1μm以下に揃えるために、微粒子化装置5内に分級用のミストフィルタ50が設けられている。ミストフィルタ50を通過した微粒子は、微粒子径が1μm以下となり、直接、微粒子吹き付け用のノズル58に供給される。また、微粒子化装置5内には、液滴化した原料を回収するための回収板49が設けられている。

【0061】微粒子化装置5で形成された微粒子は、キャリアガスとともに、流量調節弁51で流量を制御しながらノズル58に送られる。ノズル58内では、微粒子

が、ヒータ54によって約250℃まで加熱される。更に、加熱された微粒子は、ヒータ56によって約400℃に加熱された高温の空気55と混合され、最終的に、吹き付け口57における温度が300℃程度となる。このように加熱された微粒子は、分解して微粒子分解ガスとなり、吹き出し口57から基板17の表面に供給される。ノズル58内には、2つの分割流路53が設けられている。なお、図10では、2つの分割流路53を有する場合について説明するが、更に多くの分割流路を設けることも可能である。ノズル58の幅(図10の横方向の寸法)は、基板17の幅よりやや大きくなっている。

【0062】それぞれの分割流路53には熱電対59が設けられており、各分割流路53に設けられたヒータ54を、独立に制御するようになっている。更に、ノズル58中に加熱ガス55が供給され、微粒子の分解を促進する。加熱されて分解された微粒子は、反応チャンバ1内に設けられた基板17の表面に、基板17の略中央から供給される。反応チャンバ1の両側には、それぞれ排気口20が設けられている。基板17の略中央から供給された微粒子は、左右に別れて基板17の表面に沿って流れ、排気口20から排気される。基板17は、紙面に垂直方向に移動しながら成膜される。基板17は、例えば550℃程度に加熱されている。基板17の表面では、かかる熱により、微粒子の分解ガスが化学反応し、基板17の表面に酸化スズ膜が形成される。本実施例では、基板17を載置するトレイは使用していないが、図9に示すようなトレイを用いることも可能である。

【0063】図11は、図10の薄膜形成装置を用いて形成した酸化スズ膜と、微粒子分解ガスの温度調節が行なわれない従来の薄膜形成装置で形成した酸化スズ膜との特性の比較である。図中、横軸は、基板のW方向(図10では横方向)の基板の中央からの距離を示す。また縦軸は、反応性分解ガス吹きつけ温度(吹きつけ口57におけるガスの温度)、及び酸化スズ膜のシート抵抗値を示す。また、白抜きの測定結果は、本実施例の装置を使用した場合であり、黒塗りの測定結果は、従来の装置を使用した場合である。成膜に使用した基板は、L900mm×W600mm×t3.0mmのガラス基板である。なお、図10では、横方向がWを示し、紙面に対して垂直方向がLを示す。

【0064】図11から明らかなように、従来の装置を使用した場合には、基板の中央部のシート抵抗は150(Ω/\square)程度であるが、両端部では100(Ω/\square)以下となっている。これに対して、本実施例の装置を使用した場合は、基板の中央部、周辺部において、シート抵抗は100(Ω/\square)程度でほぼ一定している。このように、従来の装置において膜質が不均一となるのは、基板表面に吹きつけられる反応性流体(分解ガス)の温度が不均一であるからである。即ち、図11に示すように、本実施例にかかる装置では、反応性分解ガスの温度

は300℃程度で均一であるが、従来の装置では、基板の中央で反応性分解ガスの温度が低くなっている。このため、従来の装置では、基板中央において、十分な化学反応が起きず、導電性の酸化スズ膜のシート抵抗が高くなると考えられる。これは、キャリアガス中に微粒子を含むと、微粒子の熱容量がキャリアガスの熱容量より大きいと、特に、微粒子を多く含むほど反応性分解ガスの温度が低くなるためと考えられる。

【0065】これに対して、本実施例にかかる装置では、ノズル内に分割流路を設けるとともに、各分割流路にヒータを設けて各分割流路内を流れるガスの温度を制御している。このため、基板の中央部、周辺部ともに、ほぼ等しい温度に制御されたガスを供給することができ、これにより、形成された酸化スズ膜のシート抵抗もほぼ一定となり、特性の均一な酸化スズ膜を形成することが可能となる。なお、図11に、三角印で示した測定結果は、トレイを使用せずに、本実施例の装置で成膜した場合である。図9のトレイを使用した場合の測定結果である白抜きの四角印と比較すると明らかなように、トレイを使用することにより基板の周辺部におけるシート抵抗の増加を防止することができる。

【0066】本実施例で形成した酸化スズ薄膜は、プラズマディスプレイの透明導電膜に使用されるものである。従って、本実施例の装置を使用して酸化スズ薄膜を形成することにより、大面積のプラズマディスプレイを、再現性良く、安価に作製する可能となる。また、かかる装置は、酸化スズ薄膜の他に、ITO(Indium Tin Oxide)薄膜の形成にも使用することができる。更には、半導体デバイスの半導体膜や、照明管や反射板、テレビブラウン管前面パネル、ガラス建材等の表面に形成する光触媒膜、反射防止膜の形成等にも適用することができる。

【0067】

【発明の効果】以上の説明から明らかなように、本発明にかかる薄膜形成装置、及び薄膜形成方法を用いることにより、大面積の基板上に、均一な薄膜を、再現性良く形成することが可能となる。また、原料の利用効率を向上させ、安価な薄膜の形成が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の実施の形態1にかかる薄膜形成装置の概略図である。

【図2】 本発明の実施の形態1にかかる薄膜形成装置の外観図である。

【図3】 本発明の実施の形態2にかかる薄膜形成装置の概略図である。

【図4】 本発明の実施の形態3にかかる薄膜形成装置の概略図である。

【図5】 微粒子の凝縮に対する配管径の影響を調べる実験装置の概略図である。

【図6】 配管の内径Dと、キャリアガスに含まれる所

定の微粒子径以下の微粒子の割合との関係である。

【図7】 本発明の実施の形態4にかかる薄膜形成装置の概略図である。

【図8】 スリットダクトの寸法もと、スリットダクトを通過する微粒子の割合及びスリットダクト内での流速の均一性との関係である。

【図9】 本発明の実施の形態5にかかるトレイの概略図である。

【図10】 本発明の実施例で使用した薄膜形成装置の概略図である。

【図11】 基板幅と、酸化スズ薄膜のシート抵抗及び反応性分解ガスの吹きつけ温度との関係である。

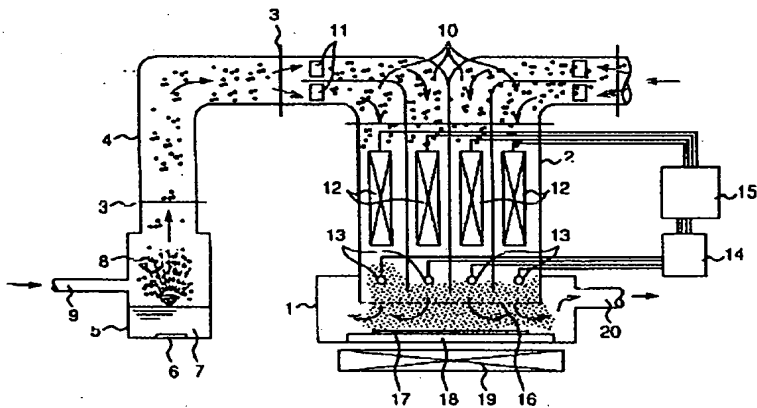
【図12】 従来の薄膜形成装置に用いられる微粒子化装置の概略図である。

【図13】 従来の薄膜形成装置の概略図である。

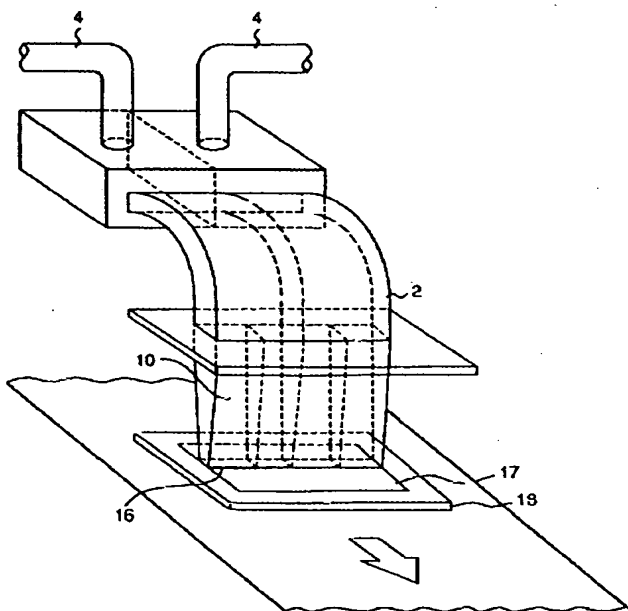
【符号の説明】

1...反応チャンバ、2...ノズル、3...配管接続部、4...配管、5...微粒子化装置、6...超音波振動子、7...原料溶液、8...微粒子、9...キャリアガス導入口、10...分割流路、11...流量調節弁、12...ヒータ、13...熱電対、14...温度計測器、15...ヒータ制御器、16...吹き出し口、17...基板、18...トレイ、19...基板加熱ヒータ、20...排気口。

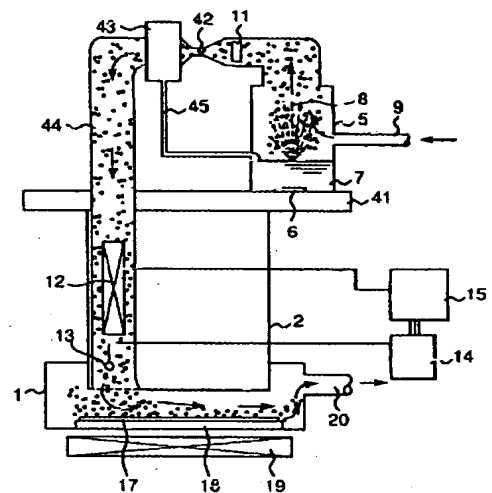
【図1】



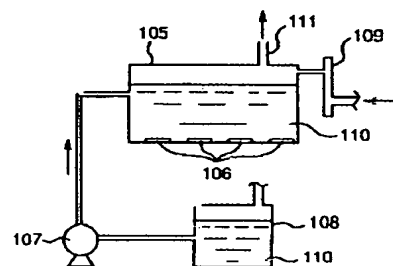
【図2】



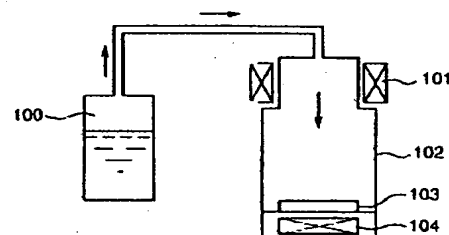
【図7】



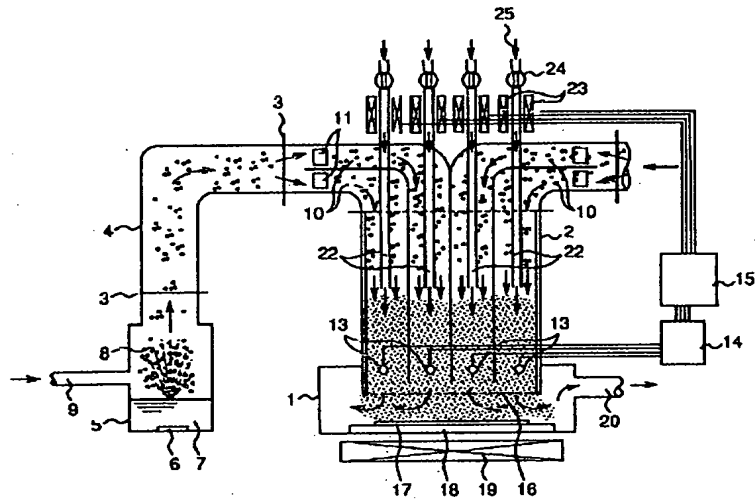
【図12】



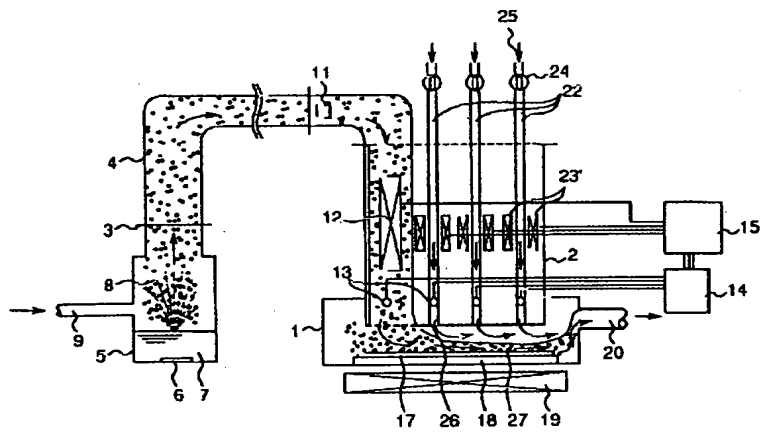
【図13】



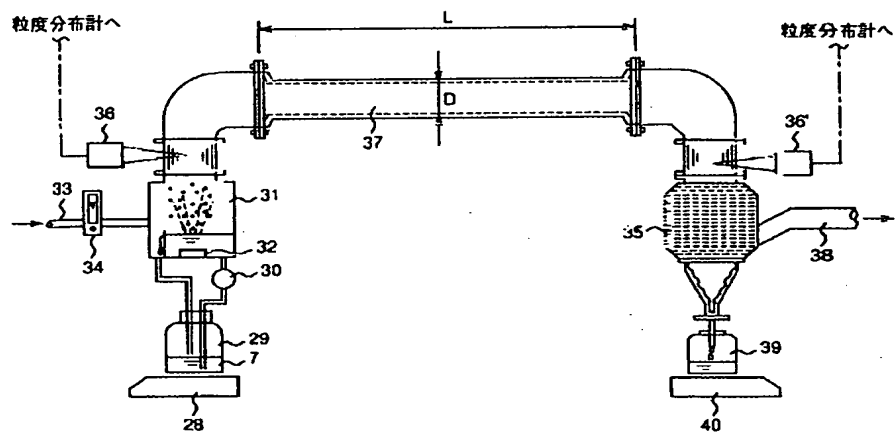
【図3】



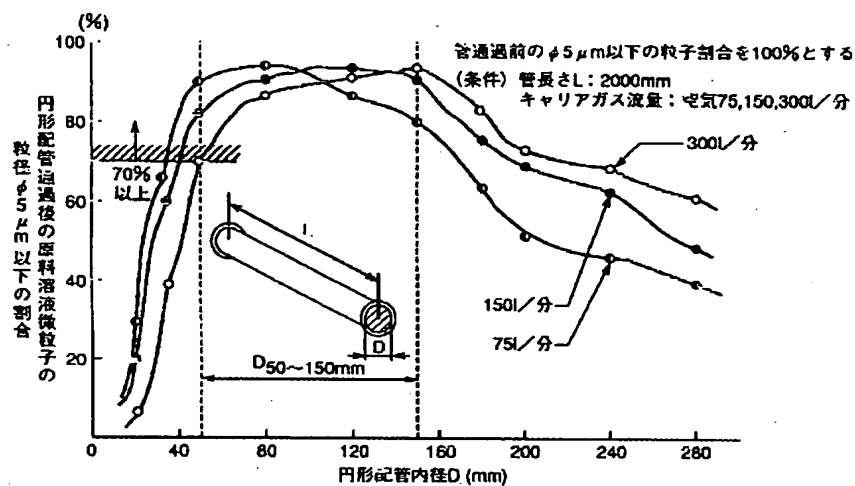
【図4】



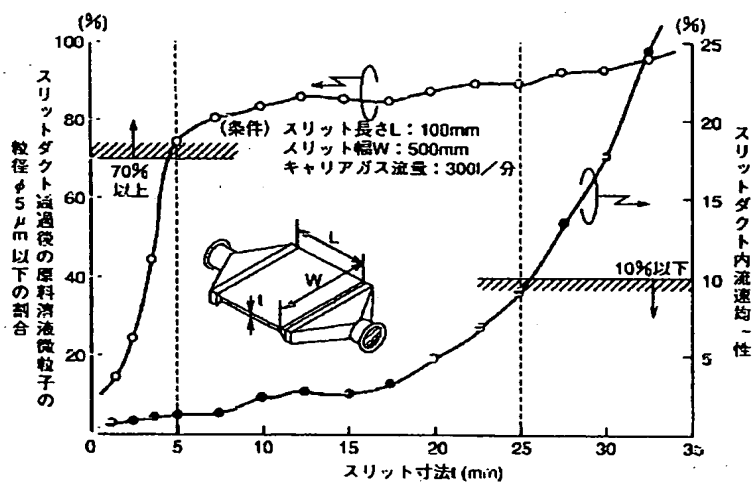
【図5】



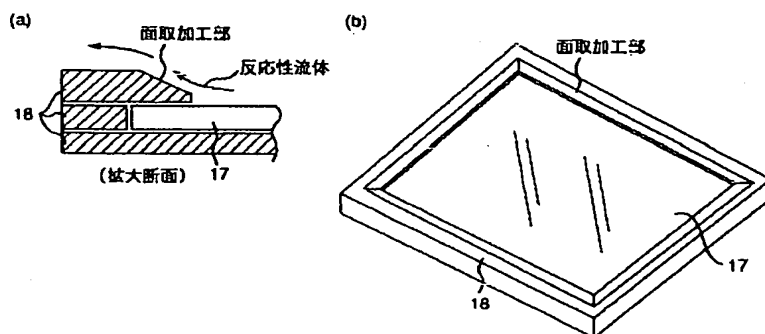
【図6】



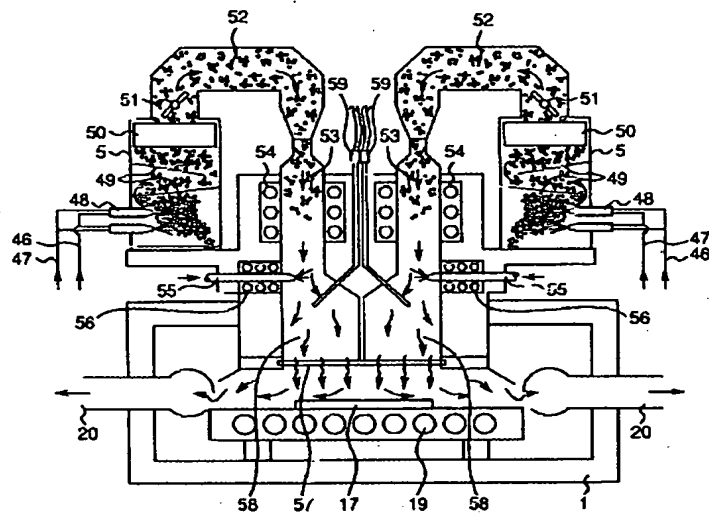
【図8】



【図9】



【図10】



【図11】

